

ЧЕРНІВЕЦЬКИЙ ДЕРЖАВНИЙ УНІВЕРСИТЕТ
ім. Ю. ФЕДЬКОВИЧА

УДК 539.2

БОРЧА МАР'ЯНА ДРАГОШІВНА

**ВИЗНАЧЕННЯ РЕАЛЬНОЇ СТРУКТУРИ КРИСТАЛІВ
МЕТОДАМИ БАГАТОХВИЛЬОВОЇ
ДИФРАКТОМЕТРІЇ.**

01.04.07 - фізика твердого тіла

Автореферат
дисертації на здобуття наукового ступеня
кандидата фізико-математичних наук

Чернівці - 1997

548 +
539

ЛННБ України ім.В.Стефаніка



00737959 (/)

Дисертацією є рукопис.

Роботу виконано на кафедрі фізики твердого тіла Чернівецького державного університету ім. Ю.Федьковича.

Науковий керівник: доктор фізико-математичних наук
професор **Раранський Микола Дмитрович**
Чернівецький держуніверситет, завідуючий
кафедрою фізики твердого тіла

Офіційні опоненти: член-кореспондент НАН України,
доктор фізико-математичних наук,
професор **Молодкін Вадим Борисович**
інститут металофізики НАН України,
заступник директора

доктор фізико-математичних наук,
професор **Венгреневич Роман Дмитрович**
Чернівецький держуніверситет, завідуючий
кафедрою загальної фізики

Провідна організація: Інститут фізики напівпровідників НАН України,
м. Київ.

Захист відбудеться 30 жовтня 1997 р. о 15-ій годині на засіданні спеціалізованої вченої ради Д 76.051.01 при Чернівецькому державному університеті ім. Ю. Федьковича за адресою: 274012 м.Чернівці, вул. Коцюбинського, 2, Чернівецький держуніверситет.

З дисертацією можна ознайомитися в науковій бібліотеці Чернівецького державного університету ім. Ю. Федьковича (вул. Л.Українки, 23).

Автореферат розіслано "30 вересня 1997р."

Вчений секретар
спеціалізованої Ради

М.В. Курганецький

ЗАГАЛЬНА ХАРАКТЕРИСТИКА РОБОТИ

Актуальність теми досліджень. Розвиток сучасної науки і техніки характеризується широким застосуванням напівпровідникових матеріалів, їх композицій та зменшення розмірів окремих структурних елементів. Дефекти кристалічної ґратки і далекодіючі деформаційні поля визначають в основному електрофізичні характеристики та стійкість матеріалів до змін зовнішнього середовища. Тому розробка нових неруйнуючих методів структурної діагностики напівпровідникових матеріалів є актуальним науковим завданням.

Рентгенівські методи, що базуються на явищі дифракції рентгенівського випромінювання в кристалічних тілах, знаходять практичне застосування для визначення структурної досконалості матеріалів. В даному випадку періодичність структури твердих тіл зумовлює вибіркову взаємодію між випромінюванням і кристалом, причому, розсіяння випромінювання відбувається на електронній густині. Будь-яка зміна періодичності розміщення атомів викликає відповідне порушення процесу розсіяння рентгенівських променів. Одночасна дифракція рентгенівських променів від декількох, по різному орієнтованих кристаліграфічних площин, приводить до збільшення кількості дифрагованих хвиль і супроводжується, як правило, якісними і кількісними змінами в процесах розсіяння. Це і обумовлює появу нових можливостей, які можуть бути використані для структурних досліджень реальних кристалів.

Таким чином, вивчення механізмів і закономірностей багатохвильової дифракції рентгенівських променів в реальних кристалах є перспективним напрямком розвитку нових рентгенівських методів дослідження структури реальних кристалів.

Зв'язок роботи з науковими програмами, планами, темами.

Дисертаційне дослідження є складовою частиною комплексних державних науково-технічних програм з пріоритетних напрямків розвитку науки і техніки Державного фонду фундаментальних досліджень України, проект №2.4/551 "Розробка рентгенодифракційних методів та дослідження структури реальних кристалів".

Метою даної роботи є теоретичне і експериментальне дослідження багатохвильових процесів розсіяння рентгенівських променів реальними кристалами. При цьому вирішувались наступні **завдання**:

1. Розробка методики визначення компонент тензора деформацій (багатохвильової тензометрії) на основі методу Ренінгера для оцінки напруженого стану кристалу.
2. Дослідження впливу умов росту синтезованих кристалів алмазу на формування профілю ліній Коселя.
3. Дослідження механізмів зміни інтегральних характеристик ліній Коселя при однобічному стискуванні та температурному охолодженні синтезованих кристалів алмазу.



4. Чисельне моделювання впливу одновимірних деформаційних полів та їх комбінацій на багатохвильове аномальне проходження рентгенівських променів.

Методи дослідження: багатохвильова дифрактометрія і топографія, метод Коселя, метод інтегральної інтенсивності та числові методи з розробкою алгоритмів і програмного забезпечення для розв'язку поставлених задач.

Наукова новизна роботи:

1. Створена методика визначення компонент тензора деформацій і оцінки напруженого стану реальних кристалів на основі аналізу багатохвильових дифрактограм Ренінгера.

2. Вперше проведено комплексне дослідження впливу умов росту, одновісного стискування та температурного охолодження синтезованих кристалів алмазу на формування профілів ліній Коселя.

3. Вперше з використанням чисельного розв'язку системи рівнянь в частинних похідних із змінними коефіцієнтами проведено дослідження одновимірних комбінованих деформаційних полів на аномальне проходження рентгенівських променів.

Практичне значення роботи. Отримані в роботі дані розкривають нові можливості багатохвильової дифракції для визначення напруженого стану кристалів. Розроблена методика визначення компонент тензора деформацій. Результати моделювання впливу різного роду структурних спотворень на трьоххвильовий ефект Бормана, а також проведений аналіз напруженого стану синтезованих кристалів з профілів ліній Коселя можуть бути використані для проведення ґнеруйнівних досліджень досконалості монокристалів та подальшого розвитку динамічної теорії розсіяння рентгенівських променів. Зокрема дослідження впливу температурного охолодження, одновісного стискування та умов синтезу алмазу на зміну форми ліній Коселя необхідні для розробки нових технологій вирощування кристалів алмазу із заданими властивостями.

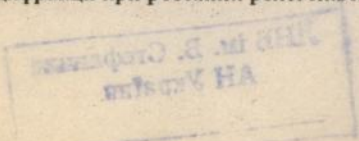
Встановлені закономірності формування багатохвильових областей дифракції при перетині ліній Коселя в кристалах германію, що містять різного типу комбіновані одновимірні деформаційні поля, доповнюють відомі фізичні механізми багатохвильового розсіяння рентгенівських променів в умовах аномального поглинання.

Основні положення, що виносяться на захист.

1. Методика визначення компонент тензора деформацій і результати досліджень на її основі акустично збуджених кристалів та гетероспітаксійних систем.

2. Результати комплексного дослідження формування профілів ліній Коселя в синтезованих кристалах алмазу при зміні умов росту, структурної досконалості, температурного охолодження та одновісного стискування.

3. Механізми і закономірності формування багатохвильових областей дифракції при розсіянні рентгенівського випромінювання в кристалах з комбіно-



ваними одномірними спотвореннями кристалічної структури в умовах аномального поглинання.

Апробація роботи. Результати досліджень, що покладені в основу дисертації, доповідались і обговорювались на наступних конференціях, нарадах і семінарах: IV міжнародній конференції з фізики і технології тонких плівок (Івано-Франківськ, 1993), Ювілейній конференції Інституту електронної фізики (Ужгород, 1993), Європейському симпозіумі з рентгенівської топографії і високороздільної рентгенівської дифракції (Палермо, Італія, 1996), першій та другій міжнародних конференціях по фізичним проблемам напівпровідників (Чернівці, 1995, 1997) і семінарах кафедри ФТТ ЧДУ.

Особистий внесок. В роботі [1] автор приймав участь в представленні і обговоренні експериментальних результатів, в роботі [2] приймав участь в постановці задачі, розробці методики і представленні розрахункових моделей деформацій, в [3] приймав участь в постановці задачі, здійсненні розрахунків по визначенню компонент тензора деформацій. В роботах [4-11] автор приймав участь в постановці задачі, проведенні теоретичних і розрахункових досліджень та обговоренні отриманих результатів.

Публікації. По темі дисертації опубліковано 11 друкованих праць, приведених на закінчення автореферату.

Структура і об'єм дисертації. Дисертація складається із вступу, чотирьох розділів, закінчення, списку літератури з 130 джерел. Виклад зроблено на 146 сторінках друкованого тексту, що містять 32 рисунки.

ОСНОВНИЙ ЗМІСТ РОБОТИ

В роботі викладені основні положення динамічної теорії дифракції рентгенівських променів в досконалих і спотворених кристалах. Проведений детальний аналіз публікацій, які присвячені теоретичним і експериментальним дослідженням в області багатохвильової дифрактометрії і топографії реальних кристалів, а також проблемі визначення фазових співвідношень між взаємодіючими хвильовими полями. Приведений також аналіз літературних даних розвитку теорії і практичного використання методу Коселя для діагностики різних структурних недосконалостей.

Далі в дисертації описується методика визначення компонент тензора деформації з використанням багатохвильової дифрактометрії. Вихідним моментом тут є те, що метод Ренінгера дає змогу отримати кількісну оцінку деформації з аналізу лише однієї експериментальної дифрактограми, отриманої в одній точці кристалу. Це і зумовило доцільність використання багатохвильової дифракції для оцінки напруженого стану реальних кристалів. Показано, що для отримання кількісної інформації про напружений стан кристалу з рентгенодифрактометричних даних необхідно виміряти зміну кутової відстані ψ між відповідними дифракційними максимумами, які повинні бути найбільш чутливими до дефор-

мації. Далі формується система з шести рівнянь типу:

$$df = \frac{\partial f}{\partial x_1} \cdot dx_1 + \frac{\partial f}{\partial x_2} \cdot dx_2 + \dots + \frac{\partial f}{\partial x_6} \cdot dx_6$$

$$\psi = f(x_1, x_2, \dots, x_6) = \frac{T}{\sqrt{S \cdot Q}},$$

$$\text{де } T = (\vec{H}_m \vec{H}_{mc}) \quad S = \frac{4}{\lambda^2 \cdot H^2} - 1, \quad Q = |\vec{H} \times \vec{H}_m|^2,$$

а \vec{H}_m , \vec{H}_{mc} - вектори дифракції вторинного та зв'язуючого відбивання.

Розв'язок даної системи дає змогу визначити компоненти тензора деформації. Змінні x_i є скалярними добутками базисних векторів елементарної комірки.

Так як величини $\partial f_m / \partial x_i$ залежать від x_i , то для отримання розв'язку використовується ітераційний метод. В якості нульового наближення вибираються значення x_i , які відповідають ідеальному кристалу.

На основі розробленого алгоритму проведено моделювання впливу слабких направлених деформацій ($\Delta d / d \sim 10^{-5}$) на зміну місцеположень багатохвильових дифракційних максимумів на сфері обмеження, проекції яких на екваторіальну площину і відображає багатохвильова дифрактограма. Таке моделювання впливу величини та напрямку деформацій на зміщення $\Delta\psi$ розміщення дифракційних максимумів дозволило вибрати найбільш чутливі до деформацій дифракційні максимуми.

При використанні в якості базисного заборонене відбивання типу (600) серед піків найбільш чутливими до деформації у напрямках [001] і [101] є структурно еквівалентні відбивання - (315), (3 $\bar{1}$ 5), (3 $\bar{1}$ 5), (31 $\bar{5}$), а у напрямку [110] — (351), (35 $\bar{1}$), (3 $\bar{5}$ 1), (3 $\bar{5}$ 1). Відповідно, для даних структурно еквівалентних максимумів спостерігаються і найбільші кутові відхилення $\Delta\psi$, проте, що характерно, не однакові для всіх відбивань. Приклади модельних зображень представлені на рис. 1.

При використанні в якості базисного відбивання забороненого структурою відбивання (222) теж спостерігається полярність в зображеннях відповідних просторових і плоских фігур кутових змішень дифракційних максимумів, що також пов'язано з напрямком і величиною деформації. Проте, на відміну від попередніх випадків, ці фігури вже не є еліпсами.

Таким чином, найбільшу зміну кута ψ виявляють ті дифракційні максимуми, для яких вектор дифракції даного або об'єднаного відбивання близький до напрямку вектора деформації.

Значний інтерес викликають дослідження дифракції рентгенівських променів в акустично збуджених кристалах. Резонансна акустична дія дозволяє ке-

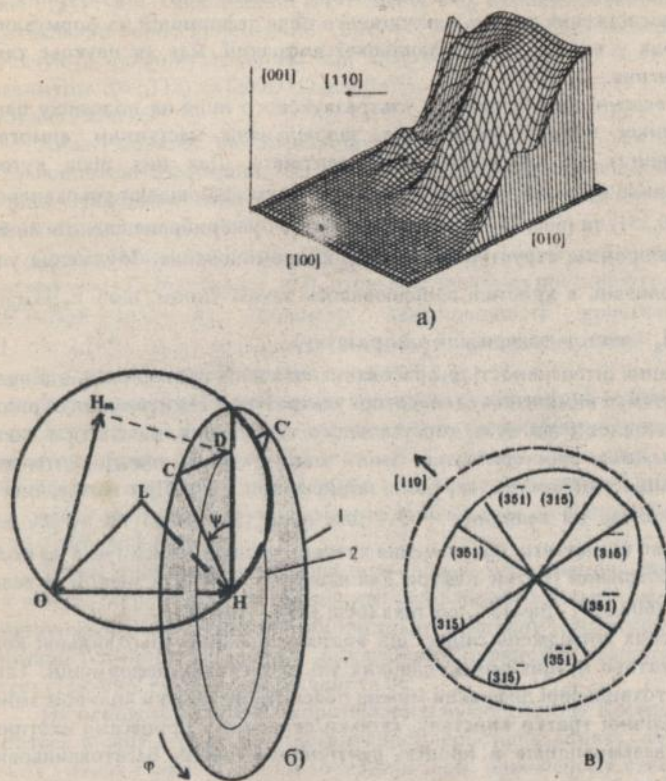


Рис. 1.

- а) Модельне представлення впливу направленої деформації. Кристал Si, CuK_α -випромінювання, базисне відбивання (600);
 б) схема азимутального сканування в оберненому просторі;
 в) зміна вектора \vec{H}_m в проекції на коселівську площину для групи структурно-еквівалентних відбивань з $\psi = 25.73^\circ$.

рувати рентгенівським хвильовим поєм в кристалі. Це значно розширює можливості рентгенівських методів для визначення різного типу структурних дефектів. Тому, дослідження впливу періодичного поля деформацій на формування хвильового поля у випадку багатохвильової дифракції, має як наукове так і практичне значення.

При проведенні аналізу впливу ультразвукового поля на поведінку багатохвильових піків вибрані відбивання задовільняли наступним вимогам: квазікомпланарність та структурна еквівалентність. Для цих піків кутова відстань ψ повинна бути найменшою. Таким вимогам відповідали трьоххвильові відбивання (600,351) та (600,35 $\bar{1}$). Для дослідження було вибране базисне відбивання (600), заборонене структурою, і $\text{CuK}\alpha$ -випромінювання. Збудження ультразвукових коливань в кристалі здійснювалось таким чином, щоб $\vec{e}_s \parallel \vec{H}_{600}$ і $(\vec{K}_s \vec{H}_{600})=0$ (\vec{e}_s - вектор поляризації ультразвуку).

Вимірювання інтенсивності дифрагованих променів проводилось одночасно при увімкненому і вимкненому генераторі ультразвуку. На отриманих кривих розподілу інтенсивності від кута азимутального сканування, навіть при таких слабких деформаціях, спостерігаються зміни максимальних значень інтенсивності і їх зміщення з положень, які вони займали при $U=0$. При цьому, інтенсивність зменшилась на величину $\sim 4-5\%$ для піків (600,351) і на $\sim 2-3\%$ для (600,35 $\bar{1}$). Цікаво відзначити, що значення кутових зміщень максимумів на вході і виході вузла оберненої ґратки з сфери Евальда протилежні за знаком, а величин їх: для піка (600,351) - $\Delta\psi \approx 15''$, для піка (600,35 $\bar{1}$) - $\Delta\psi \approx 12''$.

З проведених досліджень слідує, що квазікомпланарні трьоххвильові конфігурації є достатньо чутливими до слабких ультразвукових деформацій. Таку чутливість багатохвильової дифракції можна пояснити не стільки впливом зміни періодів кристалічної ґратки кристалу, скільки складними процесами екстинкційно-фазових взаємовпливів в процесі рентгеноакустичних багатохвильових взаємодій.

У зв'язку з широким використанням гетероепітаксійних систем у напівпровідниковому виробництві, мають певний інтерес дослідження впливу стехіометричного складу сполук та півок на їх основі, які супроводжуються зміною кутових положень дифракційних максимумів при азимутальному скануванні. Такий аналіз на основі розробленого методу багатохвильової тензометрії було проведено на прикладі сполуки типу $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}/\text{BaF}_2$.

Дифрактограми азимутального сканування гетеросистеми $\text{PbSnTe}/\text{BaF}_2$ були отримані на рентгенівському дифрактометрі ДРОН-2.0 з використанням монолітного двокристалного монохроматора, виготовленого з бездислокаційного кристалу Ge, в якому використовувались симетричні відбивання (111) та ($\bar{1}\bar{1}\bar{1}$). Це дозволило зменшити розбіжність пучка в азимутальному напрямку

приблизно до 10° , тоді як в брегівському напрямку розбіжність складала 1° .

В даному випадку в якості вісі азимутального сканування вибране дозволене структурою відбивання (111) для CuK_α -випромінювання. Такий вибір обумовлений типом кристалічної ґратки, а також умовами експерименту, що забезпечують найвищу точність. Цій вимозі задовільняють пари дифракційних максимумів (002,113) та (200,311) для BaF_2 , а також (135,262) та (531,262), (260) та (315) для PbSnTe .

Аналіз показав, що до нарощування епітаксійної плівки підкладка BaF_2 мала залишкові деформації. Направленість деформацій дозволила оцінити їх величини. Найбільші зміщення зазнають ті максимуми, вектор дифракції яких близький до напрямку [010].

Для епітаксійної плівки PbSnTe на основі аналізу на дифрактограмі пар максимумів (135,262) та (531,262), отримане значення постійної ґратки становило $a = 6.3404 \pm 8.9 \cdot 10^{-5}$ А. Параметр невідповідності кристалічних ґраток $\Delta d / d = 2.28\%$. Це дозволило визначити стехіометричний склад сполуки $\text{Pb}_{1-x}\text{Sn}_x\text{Te}$ за правилом Вегарда і $x = 0.1468$.

За встановленими періодами ґраток гетероструктури оцінена також густина дислокацій невідповідності, що виникають в перехідному шарі. Для цього використано модель Ван-дер-Мерве, із якої густина дислокацій невідповідності (або відстань між ними) залежить від різниці періодів ґраток кристала і плівки. Для даної гетероструктури густина дислокацій невідповідності становить $N_g = 3.3 \cdot 10^8 \text{ см}^{-2}$.

Таким чином, використання розробленої методики аналізу багатохвильових дифрактограм дозволяє визначити ряд важливих кількісних параметрів, що характеризують напружений стан кристалу: величину і напрямок переважної деформації (компоненти тензора деформацій), параметри невідповідності ґраток гетероструктур, густину дислокацій та ін.

На основі методу широкорозбіжного пучка (методу Коселя) в роботі проводиться аналіз структурної досконалості кристалів алмазу, які синтезовані в різних умовах і піддані різним зовнішнім діям: одновісному стиску, охолодженню і термоциклованню. Об'єктами досліджень були природний кристал алмазу та кристали синтезовані в системах Ni-Mn-C , Ni-Mn-C+V ; а також кристал, вшпечений методом термоградієнту.

Алмаз, як відомо, володіє рядом унікальних властивостей і механічних характеристик: нейтральність до агресивних середовищ, велика міцність, висока термостійкість і теплопровідність, низька магнітна сприйнятливість, високі діелектричні властивості і різноманітність механізмів провідності. Разом з тим, процес одержання монокристалів із стабільними, а тим більш із заданими властивостями, ще дуже далекий від завершення. Основна проблема полягає в тому, що синтезовані кристали алмазу володіють неоднорідною зонально секторною будовою, обумовленою селективним захопленням домішок площинами кри-

сталічної ґратки під час його росту.

Експериментальні дослідження синтезованих алмазів проводились в інституті надтвердих матеріалів АНУ (м. Київ), де розроблена оригінальна методика аналізу тонкої структури ліній Коселя. Досліджувались монокристали алмазу різного походження розмірами ~1.0-1.5 мм і товщиною ~1.0 мм.

Характерною рисою для всіх досліджуваних кристалів є наявність екстинкційної і дифракційної складових, які утворюють чорно-білий контраст ліній Коселя. Такий контраст обумовлений динамічними ефектами розсіяння рентгенівських променів. В досліджуваних кристалах суттєво змінюються співвідношення значень максимумів і інтегральних інтенсивностей ліній $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$. Причиною цього може бути як пружне розсіяння рентгенівського випромінювання на статичних спотвореннях ґратки так і непружне дифузне розсіяння на фонах, плазмонах і внутрішніх електронах домішкових атомів реального кристалу. В результаті такого складного процесу динамічного і багатократного перерозподілу розсіяння можна пояснити порушення співвідношення інтенсивностей між $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$ лініями Коселя (рис.2). При цьому, найбільше значення інтегральної відбиваючої здатності характерне для кристалів, синтезованих в системі росту Ni-Mn-C. Найменше - в системі росту Ni-Mn-C-B.

Максимальний приріст розсіюної інтенсивності для синтезованих алмазів при розподілі вздовж основи палатки Бормана характерний якраз в місцях полярної асиметричної складової розсіяння. Це стосується як $K_{\alpha 1}$ - так і $K_{\alpha 2}$ -ліній.

Для кількісного аналізу профілів Коселя використано метод інтегральних характеристик, який дозволив знайти середні і середньоквадратичні значення деформацій, а також відповідні величини фактора Дебая-Валера. Зауважимо, що, в порівнянні з природнім сталонним кристалом алмазу, найбільш неоднорідним і напруженим є синтезований кристал, отриманий в системі росту Ni-Mn-C+бор (домішки N+бор), а найменш напруженим - отриманий методом термічного градієнта.

Таким чином, і величина, і орієнтація полів залинкових деформацій у кристалах алмазу залежить від умов і методу його синтезу, гобто, від типу домішкових дефектів і способу їх розміщення в кристалічній ґратці.

Для дослідження впливу деформації стиску на динаміку зміни періодів ґратки синтезованих алмазів проводилось їх одновісне стискування в напрямку вісі четвертого порядку [001]. Максимальна величина навантаження $\sigma = 2.5$ ГПа. Із зміни профілю дифрагованих від площин (111) ліній в одновісно стиснених монокристалів алмазу, вирощених в системі Ni-Mn-C, визначені середні значення деформації кристалу та їх динаміку в процесі зміни навантаження, а також фактор Дебая-Валера L.

Для початкового стану кристалу алмазу ($\sigma = 0$) спостерігається чітке роз-

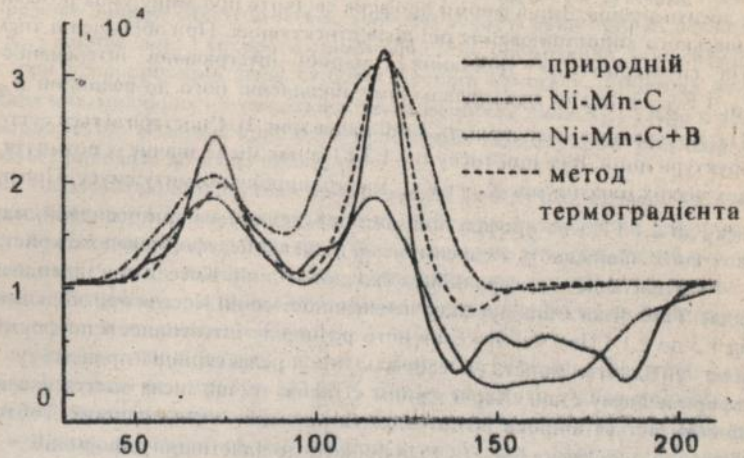


Рис.2. Залежність профілю лінії Коселя від умов росту алмазу.

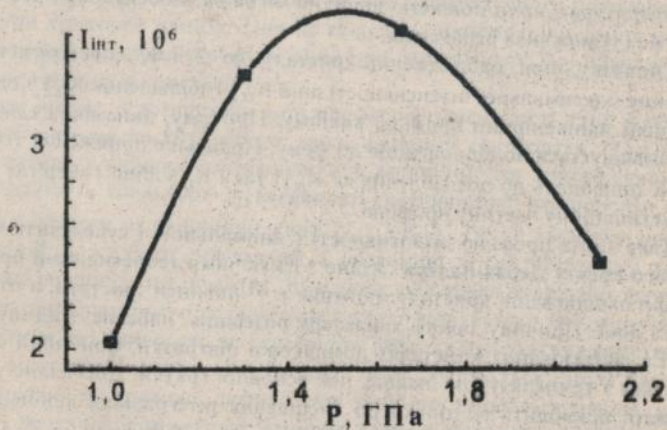


Рис.3. Залежність інтегральної відбиваючої здатності кристалу від значень тиску, що діє на кристали алмазу при його стисненні

ділення $K_{\alpha 1}$ - і $K_{\alpha 2}$ -ліній. Причому, $I_{K_{\alpha 1}} < I_{K_{\alpha 2}}$. Відбиваюча здатність кристалу досить значна. Зміна форми профілів свідчить про зміну умов розсіяння рентгенівського випромінювання під дією стискування. При збільшенні тиску до 1.3 ГПа спостерігається зростання сумарної інтегральної інтенсивності ліній $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$, а потім, при подальшому збільшенні його до величини $\sigma_{зовн.} = 2.1$ ГПа, інтегральна інтенсивність ліній падає (рис.3). Спостерігається суттєва зміна структури ліній. Вже при тиску $\sigma = 1.3$ ГПа має місце значне їх розмиття. Замість двох чітких максимумів $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$ маємо широку розмиту смугу. При зростанні тиску до 2.1 ГПа на профілі ліній вже проглядаються три осциляції, максимуми двох з них співпадають з максимумами ліній від недеформованого кристалу.

Інтенсивність дифракційних складових ліній Коселя при підвищенні тиску падає. Така різка зміна профілю інтенсивності ліній Коселя при збільшенні тиску від 1.3 до 2.1 ГПа і наближення його розподілу інтенсивності по формі до профілю вихідного кристалу свідчать про релаксацийні процеси у пружно-деформованому стані. Характерним є також те, що після зняття навантаження спостерігається широка розмита смуга розподілу інтенсивності. Тобто стискування кристалу зусиллям ~ 2.1 ГПа привело до пластичної деформації.

Дослідження впливу термічної обробки на структуру ґратки алмазу займають один із важливих напрямків дослідження дії зовнішніх чинників на кристали. Термічна обробка алмазів, як правило використовується досить часто. В той же час вплив температури на зміну профілю ліній Коселя мало вивчений.

Особливого значення набувають дослідження динаміки ґратки при низьких температурах, коли повністю відсутня міграція елементарних дефектів ґратки, а отже і їх можлива релаксація.

Спочатку, при охолодженні кристалу до 223 К спостерігається деяке зменшення максимальної інтенсивності ліній $K_{\alpha 1}$ і збільшення $K_{\alpha 2}$ з одночасним зростанням напівширини профілю вцілому. Причому, динамічна складова розсіяння зменшується по відношенню до фону. Подальше пониження температури до 173 К приводить до послаблення як $K_{\alpha 1}$ - так і $K_{\alpha 2}$ -ліній і зберігає на тому ж рівні екстинкційну частину профілю.

Така зміна профілю інтенсивності є аномальною і суперечить впливу динамічного ефекту Дебая-Валера. Згідно з існуючими теоретичними представленнями при охолодженні кристалу множник e^{-M} повинен зростати, а отже і інтенсивність ліній. Причину такого характеру розсіяння, напевне, слід шукати в наявності в синтезованих кристалах домішкової підґратки, фононний спектр якої змінюється з температурою інакше, ніж основної ґратки. Дисбаланс у фононному спектрі приводить не тільки до зменшення інтегральної відбиваючої здатності кристалу, але й до збільшення напівширини рефлексів $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$.

Цікаво, що подальше охолодження кристалу до 123 К приводить профіль ліній майже в початковий стан, тобто спостерігається збільшення інтенсивності

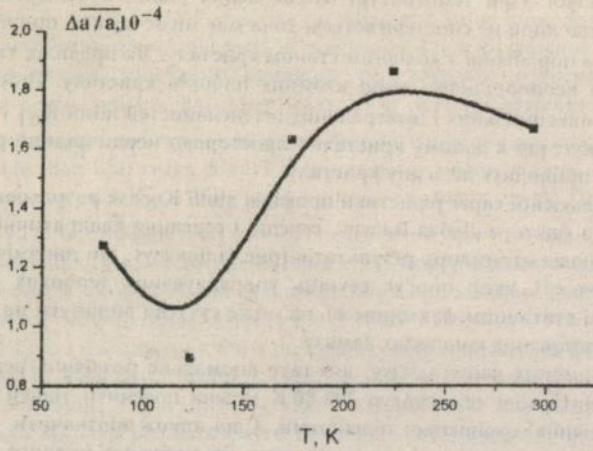
екстинкційних ліній, зменшення їх напівширини і відносно подавлення дифракційної складової. При температурі охолодження рівній 80 К, суттєвих змін у формі профілю ліній не спостерігається, хоча має місце деякий приріст і зміщення ліній $K_{\alpha 2}$ в порівнянні з вихідним станом кристалу. Як правило, така ситуація виникає при неоднорідному згині атомних площин кристалу. Динаміка зміни відношення максимальних і інтегральних інтенсивностей ліній $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$ в цілому підтверджує, що в даному кристалі є просторово неоднорідний розподіл домішок, який приводить до згину кристалу.

Для кількісної характеристики профілів ліній Коселя розраховані значення структурного фактора Дебая-Валера, середні і середньо-квадратичні деформації кристалу. Аналіз отриманих результатів (рис.4) показує, що динамічний фактор Дебая-Валера e^M , який описує ступінь упорядкування теплових коливань, в порівнянні зі статичним фактором e^L не може суттєво вплинути на процес розсіяння в синтезованих кристалах алмазу.

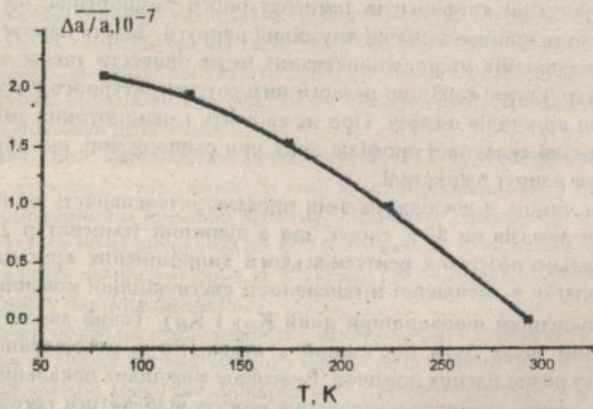
Із отриманих даних слідує, що таке аномальне розсіяння рентгенівських променів в інтервалі температур 293-80 К можна пояснити тільки впливом на процес розсіяння домішкової підсистеми. Слід також відзначити, що при нагріванні кристалу до кімнатної температури не відбулося повного відновлення профілю ліній Коселя, тобто охолодження привело до незворотніх процесів. Це може бути обумовлене тим, що в синтезованих кристалах алмазу внаслідок локальних флуктуацій коефіцієнтів температурного розширення, на різних його ділянках можуть виникати значні внутрішні напруги. Зняття напруг в результаті включення механізмів мікродвійникування може привести також до зміни дислокаційної структури, тобто до деякого низькотемпературного розупорядкування структури кристалів алмазу. Про це свідчить і немонотонна зміна інтенсивності динамічної складової профілю ліній при охолодженні, що обумовлено перерозподілом напруг в кристалі.

Таким чином, з досліджень змін профілю інтенсивності ліній Коселя при охолодженні алмазів до 80 К слідує, що в діапазоні температур 293-170 К має місце аномальне розсіяння рентгенівського випромінювання кристалічною ґраткою, яке полягає в зменшенні інтенсивності екстинкційної компоненти з одночасним збільшенням напівширини ліній $K_{\alpha 1}$ і $K_{\alpha 2}$. Такий характер поведінки профілю ліній може бути пов'язаний з наявністю в синтезованому кристалі нерівномірно розподілених домішок. Внаслідок можливих локальних флуктуацій коефіцієнтів температурного розширення можуть відбуватися також деякі релаксаційні процеси, які приводять до перебудови дефектної структури кристалу.

При відповідній орієнтації кристалу, коли реалізується умова багатохвильової дифракції, як правило, дифраговані хвилі поглинаються менше, ніж при звичайному двохвильовому ефекті Бормана. Отже відбувається підсилення ефекту багатохвильового аномального проходження. Виникає інтерес дослідження можливого впливу різного типу спотворень атомних площин на даний ефект у



а)

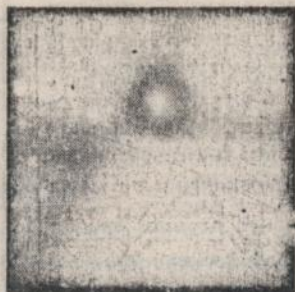


б)

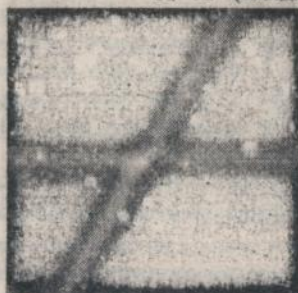
Рис. 4. Відносна зміна періоду ґратки алмазу при зниженні температури:
а) експериментальні значення;
б) розраховані з врахуванням динамічного фактора Дебая-Валера.

(220, 202)

(111, $\bar{1}\bar{1}1$)



$U_x = bz^2$ (еквідистанний згин)



$U_x = bz \sin(-\omega z)$ (комбінована деформація, $\omega = \pi/t$)



$U_x = b \sin(-\omega z)$, ($\omega = \pi/l_{ex}$, $z < l_{ex}$); при $z > l_{ex}$ $U_x = 0$

Рис.5. Топографічні зображення багатохвильових областей розсіяння при різних типах деформацій. l_{ex} -екстинкційна довжина, t -товщина кристалу, $b \sim 2.5 \cdot 10^{-5}$ - параметр деформації.

випадку трьохвильових дифракцій. Дослідження проведено для $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 200)$, $(202, 220 / 0\bar{2}\bar{2})$, $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 220)$ Лауе-дифракції $\text{CuK}\alpha_1$ випромінювання в кристалі германію. Теоретичні моделювання у вигляді топографічних зображень багатохвильового розсіяння проводилось чисельним розв'язком системи рівнянь Такагі. Для зручності аналізу впливу на процеси аномального розсіяння вибрані наступні одномірні деформаційні поля: еквідистантний згин атомних площин (далекодіючі деформації); експоненційним згином моделюються порушені шари вхідної і вихідної поверхонь; синусоїдальним згином - схований під поверхнею сильно порушений шар; комбінація експоненційного і півперіодного синусоїдального згинів. Орієнтація вектора зміщень атомних площин \vec{U} в площині векторів дифракції \vec{H}_m була паралельною або перпендикулярною векторам зв'язуючого відбивання \vec{H}_{H-K} . З аналізу отриманих результатів слідує, що наявність в кристалі направлених деформацій приводить до різних трансформацій як дво- так і трьохвильових областей розсіяння. Характерним є те, що кожен із розглянутих видів деформацій неоднаково впливає на зміну багатохвильових областей. Спільним для всіх видів деформації є те, що спостерігається значне розмиття і швидке асиметричне подавлення двохвильових областей і значна трансформація трьохвильових областей розсіяння (рис.5).

Для експоненційних спотворень вхідної чи вихідної сторін для $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 200)$ дифракції характерно подавлення однієї або іншої двохвильових ліній. Для еквідистантного і комбінованого згину трансформація зображення має аналогічний характер і визначається умовами перерозподілу інтенсивності між дифрагованими хвилями внаслідок ефекту обхідного збудження.

Для $(202, 220 / 0\bar{2}\bar{2})$ конфігурації в цілому зміна зображення визначається ефектами обміну інтенсивностями між дифрагованими і заломленою хвилями в багатохвильовій області.

Такого ж роду трансформації характерні і для конфігурації $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 220)$. Тут має місце розрив, зміщення і значне уширення двохвильових рефлексів, а також виникнення на вершинах гіпербол підсиленних або менш інтенсивних областей. При досить значних деформаціях спостерігається повне подавлення двохвильових рефлексів.

ОСНОВНІ РЕЗУЛЬТАТИ І ВИСНОВКИ

1. На основі багатохвильової дифрактометрії розроблено методику і алгоритм розрахунку компонент тензора деформацій. Моделювання впливу різних по напрямку і величині деформацій на місцеположення багатохвильових максимумів дозволило визначити найбільш структурно чутливі багатохвильові конфігурації у випадку азимутального сканування навколо заборонених структурою відбивань. Чутливість багатохвильового методу до слабких деформацій стано-

виль $\epsilon \sim 2 \cdot 3 \cdot 10^{-6}$.

2. При використанні азимутального сканування відносно дозволеного структурою відбивання, визначені величини і напрямки переважних деформацій, а також параметри невідповідності і густина дислокацій в гетероепітаксійних системах $Pb_{1-x}Sb_xTe/BaF_2$. Досліджено залежність періода ґратки вирощеної плівки від розподілу деформацій в перехідних шарах гетероструктури.

3. З аналізу профілю ліній Коселя визначені середні і середньоквадратичні значення деформацій, а також відповідні величини статичного фактора Дебая-Валера. Встановлено суттєвий вплив умов росту на структурну досконалість синтезованих кристалів алмазу. В порівнянні з природнім кристалом алмазу, найбільш неоднорідним і напруженим є синтезований кристал, отриманий в системі росту Ni-Mn-C+бор. Найменш напруженим - вирощений методом термічного градієнта.

4. Визначені середні і середньоквадратичні деформації кристалу, фактори Дебая-Валера та їх динаміка при одномірному стискуванні синтезованих монокристалів алмазу свідчать про незворотні релаксаційні процеси у пружнодеформованому стані. Пластичні зміни структури алмазу обумовлені вмістом неоднорідно розподілених домішок і високою дефектністю синтетичних кристалів.

5. При охолодженні алмазів до 80 К аномальний характер зміни профілю ліній Коселя пов'язаний з наявністю в синтезованому кристалі нерівномірно розподілених домішок.

6. Чисельним моделюванням досліджено вплив еквідистантного, експоненційного, синусоїдального і комбінованих одномірних спотворень атомних площин на аномальне проходження рентгенівських променів у випадку трьохвильових $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 200)$, $(202, 220 / 0\bar{2}\bar{2})$, $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 220)$ Лауе $CuK_{\alpha 1}$ дифракцій. Встановлені механізми й закономірності зображень багатохвильового розсіяння. Такого роду деформації приводять до асиметричного подавлення двохвильових областей розсіяння і трансформації багатохвильових областей. В залежності від напрямку орієнтації вектора зміщень атомних площин в має місце спочатку незначне підсилення ефекту аномального проходження для конфігурації $(111, \bar{1}\bar{1}1 / 200)$, а потім його подавлення.

Основні результати опубліковані в таких наукових працях:

1. Раранский Н.Д., Фодчук И.М., Сергеев В.Н., Гимчинский А.Г., Борча М.Д. Влияние акустических деформаций на многоволновую дифракцию в схеме Реннингера // Металлофизика. - 1993. - т.15, №2. - С.80-83.
2. Раранский Н.Д., Фодчук И.М., Борча М.Д., Кшевцевкая М.Л. Определение напряженного состояния и тензора деформаций в кристаллах методом многоволновой дифракции // Металлофизика и новейшие технологии. - 1995. - т.17, №6. - С.35-39.

3. Раранский Н.Д., Фодчук И.М., Борча М.Д., Крицун И.И. Определение напряженного состояния в кристаллах методом многоволновой дифракции // *Поверхность*.- 1996.- т.11,№5.- С.124-128.
4. Раранский Н.Д., Кшевецкий С.А., Фодчук И.М., Сергеев В.Н., Гимчинский А.Г., Борча М.Д. Многоволновой дифрактометрический метод определения компонент тензора деформаций // *Материали IV міжнародної конференції з фізики і технології тонких плівок*. 1993, Івано-Франківськ.- С.225.
5. Раранский Н.Д., Кшевецкий С.А., Фодчук И.М., Борча М.Д., Сергеев В.Н. Многоволновой дифрактометрический метод определения компонент тензора деформаций // *Збірник доповідей ювілейної конференції ІЕФ-93 29-30 вересня*.- 1993, Ужгород.- С.55-58.
6. Раранський М.Д., Фодчук І.М., Борча М.Д., Крицун І.І. Багатохвильовий дифрактометричний метод визначення компонент тензора деформацій в напівпровідникових кристалах // *Abstract Booklet of the First International CMSCDSS, October 4th-6th 1994.-Chernivtsi, 1994.- P.141.*
7. Раранський М.Д., Шафранюк В.П., Борча М.Д. Особливості структурних змін в монокристалах кремнію при імпульсному лазерному опроміненні // *Abstract Booklet of the First International CMSCDSS, October 4th-6th 1994.-Chernivtsi, 1994.- P.197.*
8. Raransky M.D., Fodchuk I.M., Borcha M.D. The Determination the Component of Tensor of Deformation in Semiconductor Materials // *International School-Conference on PPMSS 11th-16th of September 1995: Abstr.-Chernivtsi, Ukraine, 1995.-C.23.*
9. Raransky M.D., Fodchuk I.M., Borcha M.D. Method of multiple diffractometry for determining deformation // *Interference Phenomena in X-ray Scattering: Abstr. of International Conference 14-19 August 1995:- Moskow, Russia, 1995.- P.29.*
10. Borcha M., Raransky M., Fodchuk I., Kritsun I. Application of Multiple Diffractometry for Determination of Crystal Strains // *Abstracts of 3rd European Symposium on X-Ray Topography and High Resolution Diffraction X-Top'96, 22-24 April 1996.- Palermo, Italy.- P.14.*
11. Raransky M.D., Fodchuk I.M., Borcha M.D., Mihalyov I.V., Tkach V.M., Shtempelyuk D.B. Opportunities of x-ray Kossel method in research of real crystal structure // *Second International School-Conference on PPMSS 8th-12th of September 1995: Abstr.-Chernivtsi, Ukraine, 1997.- C.220.*

Борча М.Д. Визначення реальної структури кристалів методами багатохвильової дифрактометрії. - Рукопис.

Дисертація на здобуття наукового ступеня кандидата фізикоматематичних наук за спеціальністю 01.04.07 - фізика твердого тіла. - Чернівецький державний університет ім. Ю.Федьковича, Чернівці, 1997.

Дисертацію присвячено вивченню особливостей багатохвильової дифракції рентгенівських променів в реальних кристалах. В дисертації на основі азимутального сканування розроблено методику визначення компонент тензора деформацій для оцінки напруженого стану кристалу. Досліджено вплив умов росту, температурного охолодження та тиску синтезованих кристалів алмазу на формування профілю ліній Коселя. Виявлені закономірності формування багатохвильових областей на топографічних зображеннях при розсіянні рентгенівського випромінювання в кристалах з комбінованими одномірними спотвореннями структури в умовах аномального поглинання. Отримані результати можуть бути практично використані для проведення неруйнівних досліджень недосконалості монокристалів.

Ключові слова: багатохвильова дифракція, метод азимутального сканування, метод Коселя, реальна структура, деформації, чисельне моделювання.

Борча М.Д. Определение реальной структуры кристаллов методами мчоволновой дифрактометрии. - Рукопись.

Дисертация на соискание ученой степени кандидата физикоматематических наук по специальности 01.04.07 - физика твердого тела. - Черновицкий государственный университет им. Ю.Федьковича, Черновцы, 1997.

Дисертация посвящена изучению особенностей многоволновой дифракции рентгеновских лучей в реальных кристаллах. В диссертации на основе азимутального сканирования разработано методику определения компонент тензора деформаций для оценки напряженного состояния кристалла. Исследовано влияние условий роста, температурного охлаждения и давления синтетических кристаллов алмаза на формирование профиля линий Косселя. Вывявлены закономірности формирования многоволновых областей на топографических изображений при рассеянии рентгеновских лучей в кристаллах, содержащих комбинированные одномерные искажения структуры в условиях аномального поглощения. Полученные результаты могут быть практически использованы для проведения неразрушающих исследований несовершенства монокристаллов.

Ключевые слова: многоволновая дифракция, метод азимутального сканирования, метод Косселя, реальна структура, деформации, чисельное моделирование.

Borcha M.D. The structure of real crystal determination by multiwave diffractometry methods. - Manuscript.

Thesis for a high scientific degree by speciality 01.04.07 - solid state physics. - Chernivtsi state university, Chernivtsi, 1997.

The dissertation is devoted to studying of x-ray multiwave diffraction features in real crystals. The technique of deformation tensor components determination at the azimuthal scanning method is developed in the dissertation. The influence of growth

conditions, pressure and temperature cooling of synthetic diamond crystals on formation of Kossel line profile have been investigated. Formation laws of the multiwave areas on the topographical images are determined at x-ray scattering in crystals, containing combined one-dimensional distortion in crystal structure at anomalous absorption conditions. The received results can be practically used for nondestructive researches of single crystal imperfection and further dynamic theory of x-ray scattering development.

Key words: multiwave diffraction, azimuthal scanning method, Kossel method, real structure, deformation, numerical modeling.

Підписано до друку 29.09.97.
Формат 60х84/16.Папір друкарський.
Друк офсетний. Ум.друк.арк. 1,0,
Обл.-вид. арк. 1,0. Тираж 100 прим.
Зам. 306.

Друкарня видавництва "Рута" Чернівецького держуніверситету
274012, Чернівці, вул. Коцюбинського, 2

1838

1838

AB 38.635